

## (12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004年11月4日 (04.11.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/095563 A1(51) 国際特許分類<sup>7</sup>:

H01L 21/316

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2004/005641

(22) 国際出願日:

2004年4月20日 (20.04.2004)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2003-118860 2003年4月23日 (23.04.2003) JP  
特願2004-112761 2004年4月7日 (07.04.2004) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 東京エレクトロン株式会社 (TOKYO ELECTRON LIMITED) [JP/JP]; 〒1078481 東京都港区赤坂五丁目3番6号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 菊屋 晋吾 (HISHIYA, Shingo) [JP/JP]; 〒1078481 東京都港区赤坂五丁目3番6号 東京エレクトロン株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 吉武 賢次, 外 (YOSHITAKE, Kenji et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内三丁目2番3号 富士ビル323号協和特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

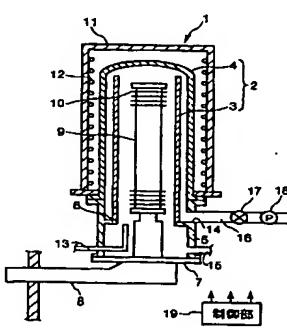
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: SURFACE MODIFICATION METHOD AND SURFACE MODIFICATION APPARATUS FOR INTERLAYER INSULATING FILM

(54) 発明の名称: 層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置



19...CONTROLLING UNIT

(57) Abstract: A surface modification method and a surface modification apparatus for interlayer insulating films are disclosed which enable to improve adhesion properties of an interlayer insulating film without changing the dielectric constant. An interlayer insulating film is formed on a semiconductor wafer (10) by firing a coating film. The surface of the interlayer insulating film is modified by heating the inside of a reaction tube (2), where the semiconductor wafer (10) is housed, to a certain temperature while supplying a gas with oxidizing activity into the reaction tube (2). The gas with oxidizing activity is ozone, water vapor, oxygen or a mixed gas of hydrogen and oxygen.



---

(57) 要約:

誘電率を維持しつつ、密着性を向上することができる層間絶縁膜表面改質方法及び表面改質装置を提供する。

半導体ウエハ10には層間絶縁膜が塗布膜を焼成することにより成されている。半導体ウエハ10を収容する反応管2内を所定の温に加熱するととともに、該反応管2内に酸化活性ガスを供給することより、層間絶縁膜の表面を改質する。該酸化活性ガスは、オゾン、蒸気、酸素、水素及び酸素の混合ガスのいずれかである。

## 明細書

## 層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置

## 技術分野

本発明は、層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置に関し、特に、低誘電率の層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置に関する。

## 背景技術

L S I の高速化に伴い、層間絶縁膜には、その比誘電率を低くすることが求められている。低誘電率の層間絶縁膜を得るには、例えば、基板としての半導体ウエハ上に、低誘電率の材料からなる塗布液をスピンドルコーティングして塗布膜 (S O D (Spin On Dielectrics) 膜) を形成し、当該塗布膜を焼成するという方法がある。

また、L S I の多層配線化・微細化に伴い、層間絶縁膜には、低誘電率の他に、例えば、ハードマスクと呼ばれる多層配線を構築する上で必要なC V D (Chemical Vapor Deposition) 膜のような、当該層間絶縁膜の上部に成膜される膜との密着性が求められている。微細化が進むと、2つの膜の接触面積が小さくなったりアスペクト比が増大したりするため、塗布膜を単に焼成しただけの層間絶縁膜では、良好な密着性が得られない場合があるためである。このような場合、C M P (Chemical Mechanical Polishing) 工程などにおいて、層間絶縁膜とその上部に成膜される膜とに膜剥がれが発生してしまうという問題があった。

かかる問題を解決するため、形成された層間絶縁膜の表面に例えばプラズマを照射することによって当該層間絶縁膜の表面を改質し、層間絶縁膜とその上部に成膜される膜との密着性を向上させることが提案されている（例えば、特開平8-78521号公報参照）。

しかし、層間絶縁膜の表面にプラズマを照射すると、層間絶縁膜の膜特性が劣化するおそれがある。例えば、層間絶縁膜の誘電率が上昇したり、層間絶縁膜の表面が荒れてしまう。

## 発明の要旨

本発明は、上記問題に鑑みてなされたものであり、膜特性の劣化を防止とともに密着性を向上することができる層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置を提供することを目的とする。

また、本発明は、誘電率を維持しつつ密着性を向上することができる層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置を提供することを目的とする。

本発明は、基板上に塗布液を塗布して形成された塗布膜を所定の温度で焼成して形成された層間絶縁膜の表面改質方法であって、前記基板を収容する反応室内を所定の温度に加熱する工程と、前記反応室内に酸化活性ガスを供給することによって、前記層間絶縁膜の表面を改質する工程と、を備えたことを特徴とする層間絶縁膜の表面改質方法である。

本発明によれば、基板上に形成された層間絶縁膜の表面が酸化活性ガスによって改質されるため、層間絶縁膜の誘電率を維持しつつ密着性を向上することができる。また、層間絶縁膜の膜特性の劣化も防止される。

好ましくは、前記酸化活性ガスは、オゾン、水蒸気、酸素、水素及び酸素の混合ガス、のいずれかである。

また、好ましくは、前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、前記酸化活性ガスは、オゾンである。

あるいは、好ましくは、前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、前記酸化活性ガスは、水素及び酸素の混合ガスである。

また、前記層間絶縁膜の表面を改質する工程では、前記層間絶縁膜の表面エネルギーが少なくとも80mN/mとなるように、前記層間絶縁膜の表面が改質されるようになっていることが好ましい。

また、前記層間絶縁膜の表面を改質する工程では、前記層間絶縁膜の表面における水の表面接触角が40°よりも小さくなるように、前記層間絶縁膜の表面が改質されるようになっていることが好ましい。

例えば、前記層間絶縁膜は、低誘電率の層間絶縁膜である。例えば、前記低誘電率の層間絶縁膜は、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液から形成

され得る。

また、本発明は、基板上に塗布液を塗布して形成された塗布膜を所定の温度で焼成して形成された層間絶縁膜の表面改質装置であって、前記基板を収容する反応室と、前記反応室内を所定の温度に加熱する加熱手段と、前記反応室内に酸化活性ガスを供給する酸化活性ガス供給手段と、前記加熱手段及び前記酸化活性ガス供給手段を制御する制御手段と、を備えたことを特徴とする層間絶縁膜の表面改質装置である。

本発明によれば、基板上に形成された層間絶縁膜の表面が酸化活性ガスによって改質されるため、層間絶縁膜の誘電率を維持しつつ密着性を向上することができる。また、層間絶縁膜の膜特性の劣化も防止される。

好ましくは、前記酸化活性ガスは、オゾン、水蒸気、酸素、水素及び酸素の混合ガス、のいずれかである。

また、好ましくは、前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、前記酸化活性ガスは、オゾンである。

あるいは、好ましくは、前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、前記酸化活性ガスは、水素及び酸素の混合ガスである。

また、前記制御手段は、前記層間絶縁膜の表面エネルギーが少なくとも80mN/mとなるように、前記加熱手段及び前記酸化活性ガス供給手段を制御するようになっていることが好ましい。

また、前記制御手段は、前記層間絶縁膜の表面における水の表面接触角が40°よりも小さくなるように、前記加熱手段及び前記酸化活性ガス供給手段を制御するようになっていることが好ましい。

例えば、前記層間絶縁膜は、低誘電率の層間絶縁膜である。例えば、前記低誘電率の層間絶縁膜は、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液から形成され得る。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明の一実施の形態の薄膜形成装置を示す図である。

図2Aは、純水による接触角と層間絶縁膜の表面エネルギーとの関係を示すグ

ラフである。

図2Bは、純水による接触角と層間絶縁膜の表面エネルギー中の極性成分エネルギーとの関係を示すグラフである。

図3Aは、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質の条件を示す表である。

図3Bは、図3Aの表に従って表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示すグラフである。

図4Aは、水蒸気による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す表である。

図4Bは、図4Aの表に従って表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示すグラフである。

図5Aは、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す表である。

図5Bは、図5Aの表に従って表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示すグラフである。

図6Aは、酸素による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す表である。

図6Bは、図6Aの表に従って表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。

図7Aは、紫外線による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す表である。

図7Bは、図7Aの表に従って表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。

図8は、本発明に従って表面改質された層間絶縁膜と、表面改質されていない層間絶縁膜とについて、誘電率の測定結果を示すグラフである。

図9は、紫外線照射により層間絶縁膜の表面を改質する熱処理装置を示す図である。

### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態にかかる層間絶縁膜の表面改質方法及び表面改質装置について、図1に示すバッチ式縦型熱処理装置1を用いて説明する。図1は、酸化活性ガスにより層間絶縁膜の表面を改質する熱処理装置を示している。

図1に示すように、熱処理装置1は、長手方向が鉛直方向に向けられた略円筒状の反応管2を備えている。反応管2は、内管3と、内管3を覆うと共に内管3

と一定の間隔を有するように形成された有天井の外管 4 とから構成された二重管構造を有する。内管 3 及び外管 4 は、耐熱材料、例えば石英により形成されている。

外管 4 の下方には、筒状に形成されたステンレス鋼 (SUS) からなるマニホールド 5 が配置されている。マニホールド 5 は、外管 4 の下端と気密に接続されている。また、内管 3 は、マニホールド 5 の内壁から突出して形成された支持リング 6 に支持されている。

マニホールド 5 の下方には、蓋体 7 が配置されている。蓋体 7 はポートエレベータ 8 により上下動可能に構成されている。ポートエレベータ 8 により蓋体 7 が上昇すると、マニホールド 5 の下方側が閉鎖される。

蓋体 7 には、例えば石英からなるウェハポート 9 が載置される。ウェハポート 9 には、層間絶縁膜として例えば有機官能基を有するポリシロキサンからなる絶縁膜のような低誘電率の絶縁膜が形成された半導体ウェハ 10 (基板) が、鉛直方向に所定の間隔をおいて複数枚収容可能である。前記層間絶縁膜は、例えば、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液をスピンドルコートィングして半導体ウェハ 10 上に塗布膜を形成して、当該塗布膜を焼成することにより半導体ウェハ 10 に形成される。

反応管 2 の周囲には、反応管 2 を取り囲むように、断熱体 11 が設けられている。断熱体 11 の内壁面には、例えば抵抗発熱体からなる昇温用ヒータ 12 が設けられている。昇温用ヒータ 12 により、反応管 2 の内部が所定の温度に昇温され、この結果、半導体ウェハ 10 が所定の温度に加熱されるようになっている。

マニホールド 5 の側面には、酸化活性ガスを導入する酸化活性ガス導入管 13 が挿通されている。なお、図 1 では、酸化活性ガス導入管 13 を一つだけ描いている。酸化活性ガス導入管 13 は、内管 3 内を臨むように、支持リング 6 より下方で挿通されている。

酸化活性ガス導入管 13 は、図示しないマスフローコントローラ等を介して、図示しない所定の酸化活性ガス供給源に接続されている。酸化活性ガスとしては、例えば、オゾン、水蒸気、酸素、水素及び酸素の混合ガス、がある。酸化活性ガスが水素及び酸素の混合ガスである場合には、水素及び酸素の混合ガスが共通の

酸化活性ガス導入管 13 から供給される。あるいは、別々の酸化活性ガス導入管 13 から水素と酸素とが別々に供給されて、反応管 2 内で混合されてもよい。

ここで、紫外線を照射することにより層間絶縁膜の表面を改質する場合には、酸化活性ガス導入管 13 が設けられずに、例えば、断熱体 11 の内壁面に複数の紫外線ランプからなる紫外線照射装置が設けられる。この場合、紫外線ランプからの紫外線により、半導体ウエハ 10 の層間絶縁膜に紫外線が照射される。

マニホールド 5 の側面には、排出口 14 が設けられている。排出口 14 は、支持リング 6 より上方に設けられており、反応管 2 内の内管 3 と外管 4 との間に形成された空間に連通している。そして、内管 3 内で発生した排ガス等が、内管 3 と外管 4 との間の空間を通って、排気口 14 に排気される。また、マニホールド 5 の側面の排気口 14 の下方には、バージガスとしての窒素ガスを供給するバージガス供給管 15 が挿通されている。

排出口 14 には、排気管 16 が気密に接続されている。排気管 16 には、その上流側から、バルブ 17 と、真空ポンプ 18 と、が介設されている。バルブ 17 は、排気管 16 の開度を調整して、反応管 2 内の圧力を所定の圧力に制御する。真空ポンプ 18 は、排気管 16 を介して反応管 2 内のガスを排気すると共に反応管 2 内の圧力を調整する。

なお、排気管 16 には、図示しないトラップ、スクラバー等が介設されており、反応管 2 から排気される排ガスは、無害化された後で熱処理装置 1 外に排気されるようになっている。

また、ポートエレベータ 8、昇温用ヒータ 12、酸化活性ガス導入管 13、バージガス供給管 15、バルブ 17、真空ポンプ 18 には、制御部 19 が接続されている。制御部 19 は、マイクロプロセッサ、プロセスコントローラ等から構成され、熱処理装置 1 の各部の温度、圧力等を測定し、測定データに基づいて、上記各部に制御信号等を出力して、熱処理装置 1 の各部を所定のレシピ（タイムシーケンス）に従って制御する。

次に、層間絶縁膜の表面改質方法について説明する。層間絶縁膜の表面改質方法は、層間絶縁膜が形成された半導体ウエハ 10 を収容する反応管 2 内を所定の温度に加熱するとともに、当該反応管 2 内に酸化活性ガスを供給する（または、

半導体ウエハ10の層間絶縁膜に紫外線を照射する)ことにより、層間絶縁膜の表面を改質するものである。以下、前述のように構成された熱処理装置1を用いた層間絶縁膜の表面改質方法について説明する。また、以下の説明において、熱処理装置1を構成する各部の動作は、制御部19によりコントロールされている。

まず、昇温用ヒータ12により、反応管2内が所定の温度に加熱される。この温度の好適な範囲は、後述するように、使用される酸化活性ガスの種類によって異なる。反応管2内は、使用される酸化活性ガスの種類に応じた最適な温度に加熱される。

次に、層間絶縁膜が形成された半導体ウエハ10を収容するウエハポート9が、蓋体7上に載置される。そして、ポートエレベータ8により蓋体7が上昇される。これにより、半導体ウエハ10が反応室内に収容される。なお、熱処理装置1で塗布膜の焼成が行われる場合(一つの熱処理装置1で塗布膜の焼成と表面改質とが連続処理される場合)には、このロード工程は不要である。

層間絶縁膜は、例えば、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液をスピンドルコートィングして半導体ウエハ10上に塗布膜を形成して、当該塗布膜を焼成することにより半導体ウエハ10に形成される。有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液は、例えば、有機官能基を有するポリシロキサンが有機溶媒に溶解された溶液である。この溶液中には、界面活性剤等の任意成分が添加され得る。このように形成された層間絶縁膜としては、ポーラス-メチルシルセスキオキサン(ポーラス-MSQ: Porous-Methyl Silsesquioxane)がある。層間絶縁膜には、例えば、20nm以下の分子もしくは原子サイズの空孔が形成され得る。

続いて、反応管2内は、使用される酸化活性ガスの種類に応じた所定の圧力に維持される。そして、酸化活性ガス導入管13から、所定の酸化活性ガスが内管3内に所定量供給される。内管3内に酸化活性ガスが供給されると、層間絶縁膜の表面エネルギー中の極性成分エネルギーが大きくなる。この結果、層間絶縁膜の表面エネルギーが大きくなる。層間絶縁膜の表面エネルギー中の極性成分エネルギーが大きくなるのは、層間絶縁膜を構成するポーラス-MSQの(Si-CH<sub>3</sub>)の一部が、酸化活性ガスにより(Si-CO)、(Si-COH)、(S

$\text{Si}-\text{O}$ ）、（ $\text{Si}-\text{OH}$ ）等の極性成分に置換されるためと考えられる。層間絶縁膜の表面エネルギーが大きくなると、層間絶縁膜の密着性能が向上する。すなわち、その上部に形成される膜、例えばハードマスク、との密着性が向上する。

また、紫外線を照射することによって層間絶縁膜の表面を改質する場合には、熱処理装置1の内部に設けられた図示しない紫外線ランプから紫外線が半導体ウエハ10の層間絶縁膜に照射される。これにより、層間絶縁膜の表面エネルギーが大きくなる。

層間絶縁膜の表面改質終了後、バルブ17の開度が制御されつつ、真空ポンプ18が駆動されて、反応管2内のガスが排気管16に排出される。また、反応管2内の圧力が常圧に戻され、ポートエレベータ8により蓋体7を下降させることにより、半導体ウエハ10がアンロードされる。

次に、本実施の形態の効果を確認するため、ポーラスーMSQからなる層間絶縁膜が形成された半導体ウエハ10が、所定の温度に加熱された熱処理装置1（反応管2）内に収容された。その後、酸化活性ガスとしてのオゾン、水蒸気、酸素、または、水素及び酸素が供給されて、当該層間絶縁膜の表面が改質された。また、同様の半導体ウエハ10に対して紫外線を照射して、層間絶縁膜の表面が改質された。そして、各層間絶縁膜の密着性及び表面エネルギーに関する測定が行われた。

改質処理された後の層間絶縁膜の表面エネルギーは、接触角法を用いて測定された。接触角法とは、層間絶縁膜上に液体を滴下し、この液体の玉（滴）と層間絶縁膜表面との接触角を測定する方法である。図2Aは、純水による接触角と層間絶縁膜の表面エネルギーとの関係を示す。図2Bは、純水による接触角と層間絶縁膜の表面エネルギー中の極性成分エネルギーとの関係を示す。

層間絶縁膜の表面エネルギーは、Owens-Wendtの方法による固体表面自由エネルギー（表面エネルギー）算出方法を参考にして算出された。この方法では、表面張力の異なる液体を用いて、各液体での接触角が測定され、Dupre-Youngの式から分散成分、極性成分、及び水素結合成分が算出され、さらに、拡張Fowkes式を用いて、分散成分と極性成分と水素結合成分とから表面エネルギー（表面張力）が導き出される。今回は、表面張力の異なる液体として、純水とエチレン

リコールとジヨードメタンとが用いられた。

図2 Aに示すように、純水による接触角と層間絶縁膜の表面エネルギーとの相関関係については、表面エネルギーが大きくなると純水による接触角が小さくなる。また、図2 Bに示すように、純水による接触角と層間絶縁膜の表面エネルギー中の極性成分エネルギーとの相関関係については、極性成分エネルギーが大きくなると純水による接触角が小さくなる。図2 Bの相関関係が、図2 Aの相関関係を導く。また、層間絶縁膜上にハードマスクが成膜されて CMP (Chemical Mechanical Polishing ) テストが行われ、膜剥がれが発生し難くなる層間絶縁膜の表面エネルギーが求められた。この結果、表面エネルギーが 80 mN/m 以上であることが好ましく、100 mN/m 以上であることがさらに好ましいことが確認された。従って、層間絶縁膜の密着性能、すなわち、その上部に形成される膜、例えばハードマスク、との密着性を向上させるには、純水による接触角が 40° 以下となるように改質することが好ましく、20° 以下となるように改質することがさらに好ましい。

以下、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質、水蒸気による層間絶縁膜の表面改質、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質、酸素による層間絶縁膜の表面改質、紫外線による表面改質の順に説明する。

#### (オゾンによる層間絶縁膜の表面改質)

ここでは、酸化活性ガス導入管 13 からのオゾン供給時間が 1 分、反応管 2 内の圧力が 133 Pa (1 Torr)、オゾン量が 25 g/Nm<sup>3</sup> とされて、反応管 2 内の温度が 200°C (比較例 2)、250°C (実施例 1)、及び、300°C (実施例 2) に設定されて、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質が行われた。そして、各層間絶縁膜について純水による接触角が測定された。図3 A は、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質の条件を示す。図3 B は、表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。また、表面改質後の各層間絶縁膜上にハードマスクが成膜されて、CMP テストが行われた。この結果 (膜剥がれが発生せず密着性を有する場合を「○」、膜剥がれが発生し密着性を有しない場合を「×」) を図3 A に示す。さらに、表面改質されない場合 (比較例 1) についても、層間絶縁膜の純水による接触角の測定及び CMP テストが行われ、この結果を図3 A 及

び図3B中に示す。

図3A及び図3Bに示すように、反応管2内の温度が250°C以上の場合（実施例1）には、層間絶縁膜の純水による接触角は40°以下であり、CMPテストの結果も良好であった。また、反応管2内の温度が300°Cの場合（実施例2）には、層間絶縁膜の純水による接触角は20°以下まで小さくなり、CMPテストの結果も良好であった。このため、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質により、層間絶縁膜の密着性能が向上し、ハードマスクとの密着性が向上することが確認できた。

一方、反応管2内の温度が200°Cの場合（比較例2）には、層間絶縁膜の純水による接触角は40°以下にならず、CMPテストの結果も満足するものではなかった。これは、反応管2内の温度が低いため、反応管2内に供給されたオゾンが改質対象となる層間絶縁膜との反応において十分に活性化されず、層間絶縁膜を構成するポーラスーMSQの一部を極性成分に置換することが十分にできなかったためであると考えられる。しかしながら、反応管2の温度が200°Cの場合においても、オゾンによる改質処理の条件を変更すれば（例えば、オゾン濃度を25g/Nm<sup>3</sup>以上にする、あるいは処理時間を1分以上にする）、十分な表面改質を得ること（表面エネルギーを向上させること）は十分可能であると考えられる。

ところで、ポーラスーMSQを用いるデバイス世代では、高温熱処理は好まれない。従って、反応管2内の温度は600°C以下であることが好ましく、400°C以下であることがさらに好ましい。このため、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質における反応管2内の温度も、600°C以下、さらには200°C～400°Cが好ましい。

一方、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質処理時における反応管2内の圧力は0.3Pa(0.003Torr)～101kPa(常圧)であることが好ましく、0.3Pa(0.003Torr)～6.65kPa(50Torr)であることがさらに好ましい。熱処理装置1の最小圧力が0.3Paである一方、オゾンは高圧力側では失活してゆく傾向にあるからである。処理温度が高温になるほど、この傾向は顕著になる。例えば、反応管2内の温度が300°Cの場合、オ

ゾンの酸化力を十分に得るには、6. 65 kPa (50 Torr) 以下であることが好ましい。

また、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質処理時におけるオゾン供給時間は、60分以下であることが好ましく、30分以下であることがさらに好ましく、10分以下であることが最も好ましい。ボーラスーMSQを用いるデバイス世代における一般的な膜の焼成処理時間は、30分～60分であり、実際の生産性を考慮したものである。また、オゾンによる層間絶縁膜の表面改質処理におけるオゾン量は、200 g/Nm<sup>3</sup> 以下であることが好ましく、100 g/Nm<sup>3</sup> 以下であることがさらに好ましい。

#### (水蒸気による層間絶縁膜の表面改質)

ここでは、反応管2内の圧力が常圧とされて、反応管2内の温度が500°C、酸化活性ガス導入管13からの水蒸気供給時間が30分に設定された場合(実施例3)と、反応管2内の温度が400°C、酸化活性ガス導入管13からの水蒸気供給時間が15分に設定された場合(比較例3)とについて、水蒸気による層間絶縁膜の表面改質が行われた。そして、各層間絶縁膜について純水による接触角が測定された。図4Aは、水蒸気による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す。図4Bは、表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。

図4A及び図4Bに示すように、反応管2内の温度が500°C、酸化活性ガス導入管13からの水蒸気供給時間が30分の場合(実施例3)には、層間絶縁膜の純水による接触角は十分に小さかった。このため、水蒸気による層間絶縁膜の表面改質により、層間絶縁膜の密着性能が向上し、ハードマスクとの密着性が向上すると考えられる。

一方、反応管2内の温度が400°C、酸化活性ガス導入管13からの水蒸気供給時間が15分の場合(比較例3)には、層間絶縁膜の純水による接触角は40°以下にならなかった。すなわち、この場合、ハードマスクとの密着性は向上しないと考えられる。従って、水蒸気による層間絶縁膜の表面改質処理では、反応管2内の温度を500°C付近まで上昇させる必要があることが確認できた。

#### (水素及び酸素(の混合ガス)による層間絶縁膜の表面改質)

ここでは、反応管2内の圧力が133Pa (1 Torr) とされ、反応管2内

の温度、酸化活性ガス導入管 13 からの水素及び酸素の供給時間、及び、水素の割合（水素混合比）が図 5 A に示すように変化された各場合（実施例 4～実施例 10）について、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質が行われた。そして、各層間絶縁膜について純水による接触角が測定された。なお、本例では、別々の酸化活性ガス導入管 13 を介して酸素と水素とが別々に反応管 2 内に供給され、反応管 2 内で混合された。図 5 A は、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す。図 5 B は、表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。

図 5 A 及び図 5 B に示すように、反応管 2 内の温度が 360°C～400°C、酸化活性ガス導入管 13 からの水素及び酸素の供給時間が 1 分～10 分、水素混合比が 5%～66% で変化された場合（実施例 4～実施例 10）、層間絶縁膜の純水による接触角は十分に小さくなつた。このため、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質により、層間絶縁膜の密着性能が向上し、ハードマスクとの密着性が向上すると考えられる。

また、好ましい温度範囲を確認するため、反応管 2 内の温度を 250°C とした場合について同様の表面改質が行われた。この場合も、層間絶縁膜の純水による接触角は十分に小さくなつた。このため、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質における反応管 2 内の温度は、600°C 以下、さらには、250°C～400°C であることが好ましい。

また、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質処理時における反応管 2 内の圧力は、0.3 Pa (0.003 Torr)～101 kPa (常圧) であることが好ましく、0.3 Pa (0.003 Torr)～0.3 kPa (3 Torr) であることがさらに好ましい。熱処理装置 1 の最小圧力が 0.3 Pa 程度である一方、水素及び酸素の酸化力は 0.3 kPa 以上の高圧では弱くなるためである。

また、水素及び酸素による層間絶縁膜の表面改質処理時におけるガス供給時間は、60 分以下であることが好ましく、30 分以下であることがさらに好ましく、10 分以下であることが最も好ましい。ポーラスーMSQ を用いるデバイス世代における一般的な膜の焼成処理時間は、30 分～60 分であり、実際の生産性を考慮したものである。また、水素の混合比は、0.001%～99% であることが好ましく、5%～66% であることがさらに好ましい。極微量の水素の添加に

より、処理中にラジカルが発生し、このラジカルにより表面改質処理が可能になるためである。

#### (酸素による層間絶縁膜の表面改質)

ここでは、反応管2内の圧力が常圧とされ、酸化活性ガス導入管13からの酸素供給時間が30分とされ、反応管2内の温度が300°C (比較例4)、400°C (比較例5)、500°C (実施例11)、及び、600°C (実施例12) に設定されて、酸素による層間絶縁膜の表面改質が行われた。そして、各層間絶縁膜について純水による接触角が測定された。図6Aは、酸素による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す。図6Bは、表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。

図6A及び図6Bに示すように、反応管2内の温度が500°C以上の場合 (実施例11、12) には、層間絶縁膜の純水による接触角は十分に小さかった。このため、酸素による層間絶縁膜の表面改質により、層間絶縁膜の密着性が向上し、ハードマスクとの密着性が向上すると考えられる。

一方、反応管2内の温度が400°C以下の場合 (比較例4、5) には、層間絶縁膜の純水による接触角は40°以下にならなかった。すなわち、この場合、ハードマスクとの密着性は向上しないと考えられる。従って、酸素による層間絶縁膜の表面改質処理では、反応管2内の温度を500°C付近まで上昇させる必要があることが確認できた。

#### (紫外線による層間絶縁膜の表面改質)

ここでは、層間絶縁膜への紫外線照射時間が、大気雰囲気中、室温 (約25°C) 下で、10秒 (実施例13)、及び、30秒 (実施例14) に設定されて、紫外線による層間絶縁膜の表面改質が行われた。そして、各層間絶縁膜について純水による接触角が測定された。図7Aは、紫外線による層間絶縁膜の表面改質の条件を示す。図7Bは、表面改質された層間絶縁膜の純水による接触角を示す。

図7A及び図7Bに示すように、紫外線照射時間が10秒以上である場合 (実施例13、14)、層間絶縁膜の純水による接触角は40°以下になった。特に、紫外線照射時間が30秒の場合 (実施例14) には、層間絶縁膜の純水による接触角は20°以下まで小さくなった。このため、紫外線による層間絶縁膜の表面

改質により、層間絶縁膜の密着性能が向上し、ハードマスクとの密着性が向上すると考えられる。また、紫外線照射時間は、10秒以上であることが好ましく、30秒以上であることがさらに好ましい。

紫外線による層間絶縁膜の表面改質処理における処理雰囲気は、大気もしくは酸素を含んだ雰囲気であることが好ましい。このような処理雰囲気であれば、紫外線照射により酸素ラジカルあるいはオゾンが発生可能であるためである。なお、紫外線による層間絶縁膜の表面改質における反応管2内の温度は、600°C以下、さらには400°C以下であることが好ましい。また、紫外線による層間絶縁膜の表面改質における反応管2内の圧力は、0.3Pa(0.003Torr)～101kPa(常圧)であることが好ましい。

次に、本発明に従う表面改質処理により層間絶縁膜の膜特性が劣化するか否かを確認するため、表面改質された層間絶縁膜の誘電率が測定された。図8は、実施例1により表面改質された層間絶縁膜と、表面改質されていない比較例1の層間絶縁膜とについて、誘電率の測定結果を示す。図8に示すように、実施例1に従う表面改質が行われても、層間絶縁膜の誘電率はほとんど変化しない。このため、本発明による層間絶縁膜の表面改質は、当該層間絶縁膜の誘電率を維持しつつ密着性を向上することができる、ということが確認できた。また、層間絶縁膜の表面を観察したところ、層間絶縁膜の表面に問題を生じるような荒れは発生していなかった。このため、本発明の表面改質は、膜特性の劣化を防止するとともに密着性を向上することができる、ということが確認できた。

以上説明したように、本発明の各実施の形態によれば、所定の温度に加熱された反応管2内の酸化活性ガスを供給する、または、層間絶縁膜に紫外線を照射することにより、層間絶縁膜の誘電率を維持しつつ密着性を向上することができる。また、膜特性の劣化を防止しながら、密着性を向上することができる。

なお、本発明は、上記の実施の形態に限られず、種々の変形、応用が可能である。

上記各実施の形態は、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液をスピンコーティングして半導体ウエハ10上に塗布膜を形成し、当該塗布膜を焼成することにより形成された層間絶縁膜について説明されている。しかしながら、本

発明はこれに限定されるものではなく、各種の層間絶縁膜に適用することが可能である。もっとも、低誘電率の層間絶縁膜の場合に、その上面に形成される膜の膜剥がれが発生しやすいことから、本発明は、低誘電率の層間絶縁膜に対して特に有効である。なお、低誘電率の層間絶縁膜とは、ポーラスーM S Qに限定されるものではなく、他の各種の低誘電率の層間絶縁膜を含む。

また、上記各実施の形態は、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液をスピニコーティングして半導体ウエハ10上に塗布膜を形成し、当該塗布膜を焼成することにより形成された層間絶縁膜について説明されている。ここで、例えば、バッチ式縦型熱処理装置1を用いて、塗布膜の焼成を実施した後に連続して改質処理を実施することも可能である。

また、上記各実施の形態では、反応管2が内管3と外管4とから構成された二重管構造のバッチ式縦型熱処理装置1を説明したが、本発明はこれに限定されるものではない。例えば、内管3を有しない単管構造のバッチ式熱処理装置に適用することも可能である。

また、本発明の表面改質装置は、バッチ式熱処理装置に限定されるものではなく、例えば、図9に示すような枚葉式の熱処理装置であってもよい。図9は、紫外線照射により層間絶縁膜の表面を改質する熱処理装置51を示している。図9に示す熱処理装置においては、熱処理装置51内の載置部52上に、層間絶縁膜が形成された半導体ウエハ53が載置される。半導体ウエハ53は、載置部52内に配設されたヒータ54により、所定の温度に維持される。熱処理装置51の上部には、複数の紫外線ランプを備える紫外線照射部55が設けられ、当該紫外線照射部55から半導体ウエハ53に紫外線が照射される。この紫外線により、半導体ウエハ53に形成された層間絶縁膜が表面改質され、誘電率を維持しつつ密着性が向上される。

また、上記各実施の形態では、酸化活性ガスとして、オゾン、水蒸気、酸素、水素及び酸素が用いられている。しかしながら、酸化活性ガスは、層間絶縁膜の表面エネルギー中の極性成分エネルギーを大きくすることができるガスであればよい。

## 請求の範囲

1. 基板上に塗布液を塗布して形成された塗布膜を所定の温度で焼成して形成された層間絶縁膜の表面改質方法であって、

前記基板を収容する反応室内を所定の温度に加熱する工程と、

前記反応室内に酸化活性ガスを供給することによって、前記層間絶縁膜の表面を改質する工程と、

を備えたことを特徴とする層間絶縁膜の表面改質方法。

2. 前記酸化活性ガスは、オゾン、水蒸気、酸素、水素及び酸素の混合ガス、のいずれかである

ことを特徴とする請求項1に記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

3. 前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、

前記酸化活性ガスは、オゾンである。

ことを特徴とする請求項2に記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

4. 前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、

前記酸化活性ガスは、水素及び酸素の混合ガスである。

ことを特徴とする請求項2に記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

5. 前記層間絶縁膜の表面を改質する工程では、前記層間絶縁膜の表面エネルギーが少なくとも80mN/mとなるように、前記層間絶縁膜の表面が改質されるようになっている。

ことを特徴とする請求項1乃至4のいずれかに記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

6. 前記層間絶縁膜の表面を改質する工程では、前記層間絶縁膜の表面における水の表面接触角が40°よりも小さくなるように、前記層間絶縁膜の表面が改質されるようになっている

ことを特徴とする請求項 1 乃至 5 のいずれかに記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

7. 前記層間絶縁膜は、低誘電率の層間絶縁膜である  
ことを特徴とする請求項 1 乃至 6 のいずれかに記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

8. 前記低誘電率の層間絶縁膜は、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液から形成されている  
ことを特徴とする請求項 7 に記載の層間絶縁膜の表面改質方法。

9. 基板上に塗布液を塗布して形成された塗布膜を所定の温度で焼成して形成された層間絶縁膜の表面改質装置であって、  
前記基板を収容する反応室と、  
前記反応室内を所定の温度に加熱する加熱手段と、  
前記反応室内に酸化活性ガスを供給する酸化活性ガス供給手段と、  
前記加熱手段及び前記酸化活性ガス供給手段を制御する制御手段と、  
を備えたことを特徴とする層間絶縁膜の表面改質装置。

10. 前記酸化活性ガスは、オゾン、水蒸気、酸素、水素及び酸素の混合ガス、のいずれかである  
ことを特徴とする請求項 9 に記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

11. 前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、  
前記酸化活性ガスは、オゾンである。  
ことを特徴とする請求項 10 に記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

12. 前記所定の温度は、250°C～600°Cであり、  
前記酸化活性ガスは、水素及び酸素の混合ガスである。  
ことを特徴とする請求項 10 に記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

13. 前記制御手段は、前記層間絶縁膜の表面エネルギーが少なくとも 80 mN/m となるように、前記加熱手段及び前記酸化活性ガス供給手段を制御するようになっている

ことを特徴とする請求項 9 乃至 12 のいずれかに記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

14. 前記制御手段は、前記層間絶縁膜の表面における水の表面接触角が 40° よりも小さくなるように、前記加熱手段及び前記酸化活性ガス供給手段を制御するようになっている

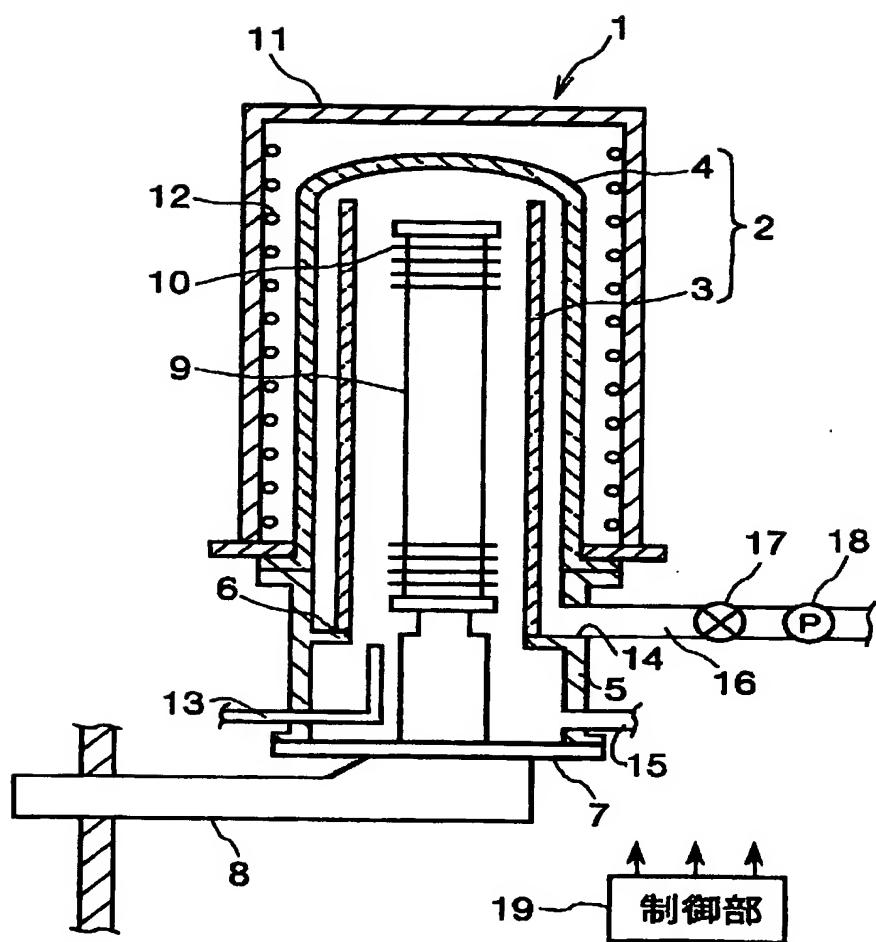
ことを特徴とする請求項 9 乃至 13 のいずれかに記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

15. 前記層間絶縁膜は、低誘電率の層間絶縁膜である  
ことを特徴とする請求項 9 乃至 14 のいずれかに記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

16. 前記低誘電率の層間絶縁膜は、有機官能基を有するポリシロキサンを含む塗布液から形成されている

ことを特徴とする請求項 15 に記載の層間絶縁膜の表面改質装置。

118



# FIG. I

2/8

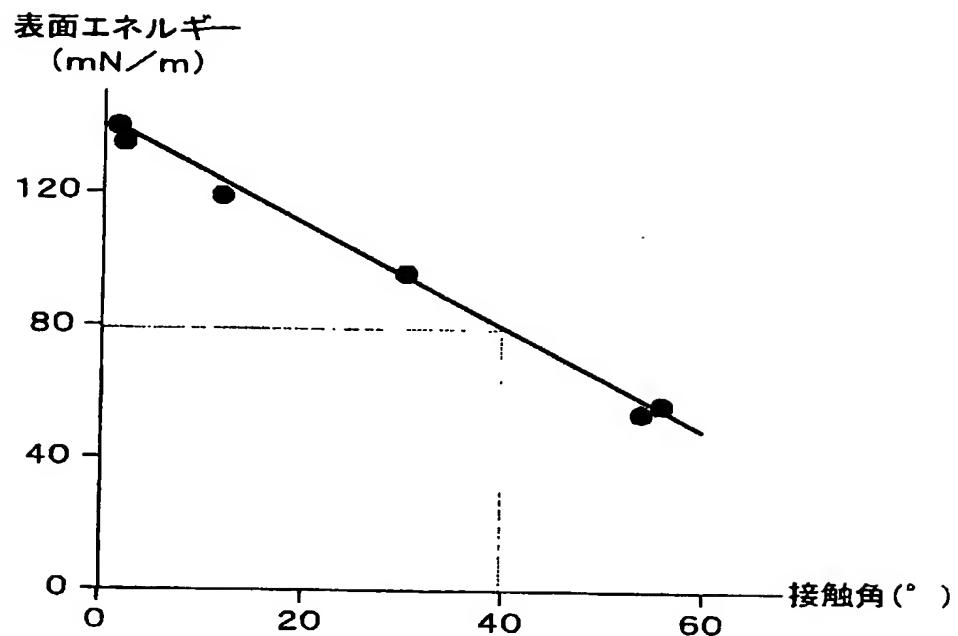


FIG. 2A

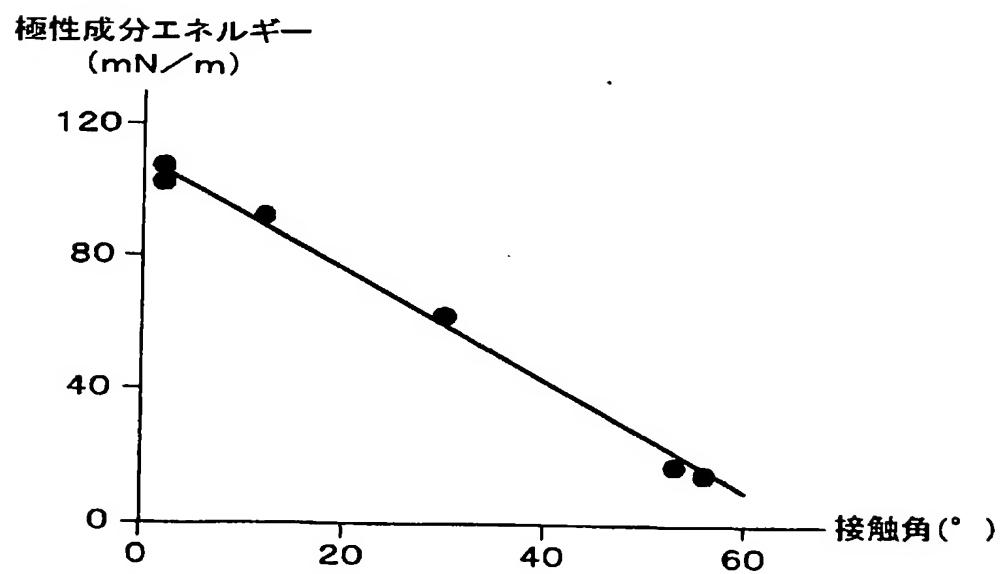


FIG. 2B

3/8

No.	種類	温度	時間	圧力	オゾン量	CMP テスト
実施例1	オゾン	250°C	1分	133Pa	25g/Nm <sup>3</sup>	○
実施例2	オゾン	300°C	1分	133Pa	25g/Nm <sup>3</sup>	○
比較例1	表面改質せず					×
比較例2	オゾン	200°C	1分	133Pa	25g/Nm <sup>3</sup>	×

FIG. 3A

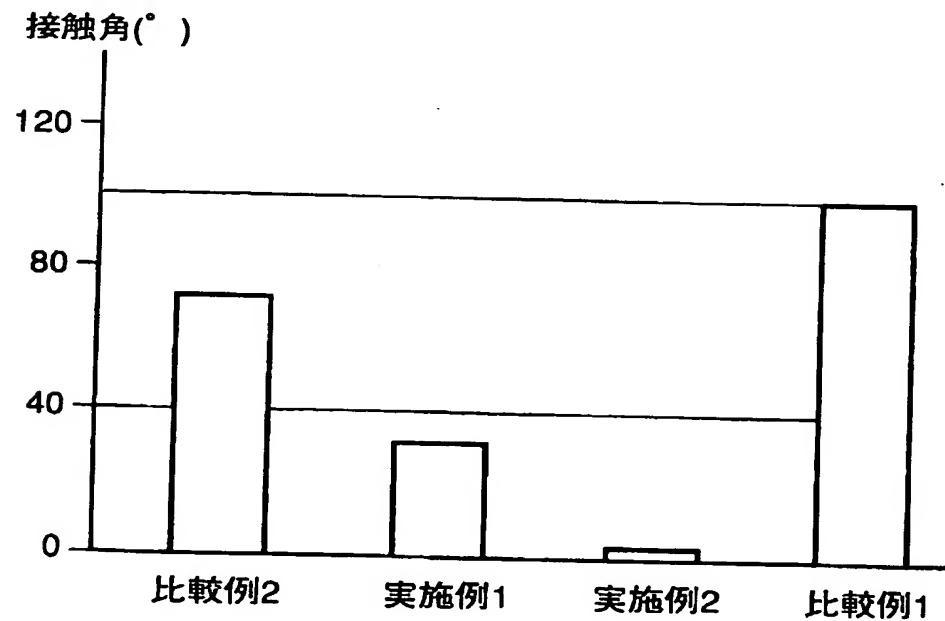


FIG. 3B

4/8

No.	種類	温度	時間	圧力
実施例3	水蒸気	500°C	30分	常圧
比較例1	表面改質せず			
比較例3	水蒸気	400°C	15分	常圧

FIG. 4A

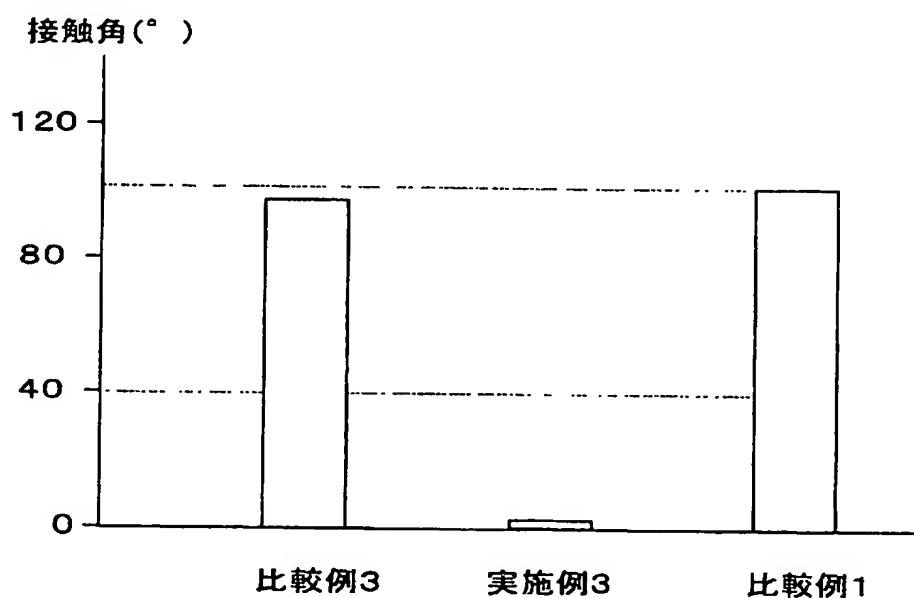


FIG. 4B

5/8

No.	種類	温度	時間	圧力	水素混合比
実施例4	$H_2 + O_2$	360°C	2分	133Pa	5%
実施例5	$H_2 + O_2$	360°C	1分	133Pa	10%
実施例6	$H_2 + O_2$	400°C	1分	133Pa	10%
実施例7	$H_2 + O_2$	360°C	10分	133Pa	33%
実施例8	$H_2 + O_2$	400°C	1分	133Pa	33%
実施例9	$H_2 + O_2$	360°C	10分	133Pa	66%
実施例10	$H_2 + O_2$	400°C	1分	133Pa	66%
比較例1	表面改質せず				

FIG. 5A

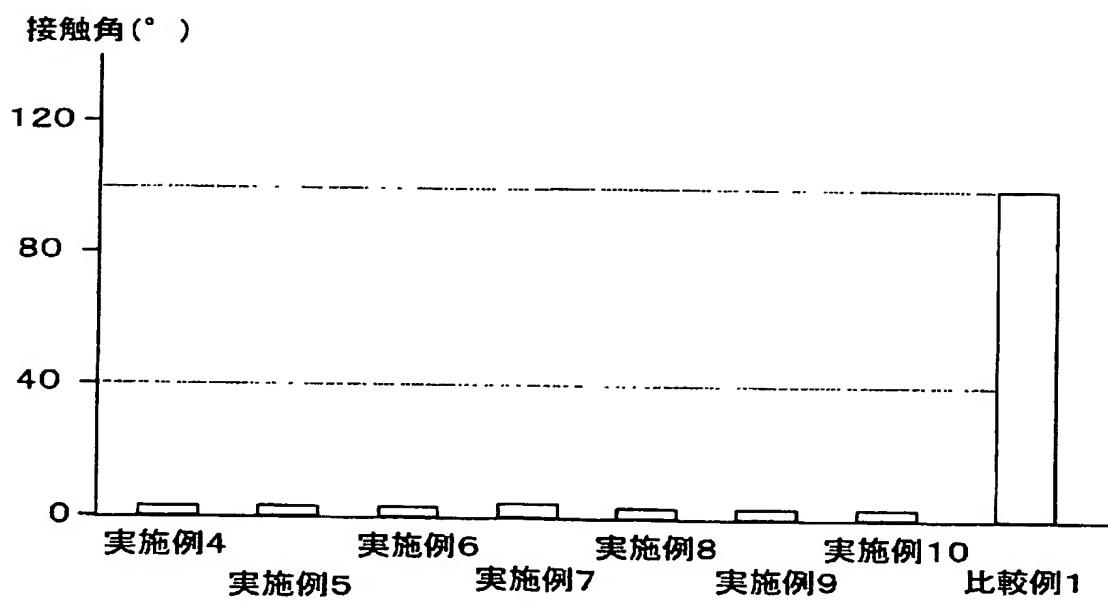


FIG. 5B

6/8

No.	種類	温度	時間	圧力
実施例11	O <sub>2</sub>	500°C	30分	常圧
実施例12	O <sub>2</sub>	600°C	30分	常圧
比較例1	表面改質せず			
比較例4	O <sub>2</sub>	300°C	30分	常圧
比較例5	O <sub>2</sub>	400°C	30分	常圧

FIG. 6A

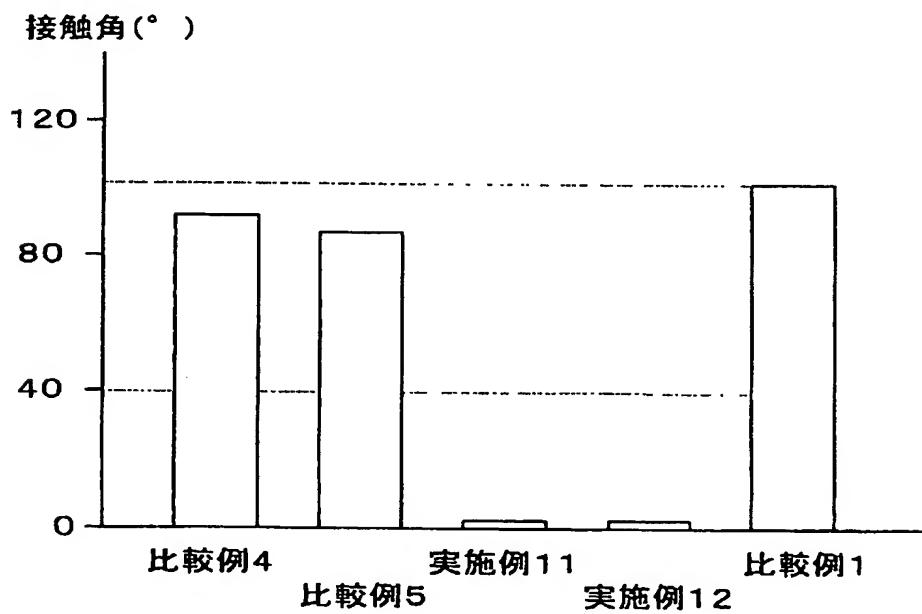


FIG. 6B

7/8

No.	種類	照射時間
実施例13	紫外線	10秒
実施例14	紫外線	30秒
比較例1	表面改質せず	

FIG. 7A

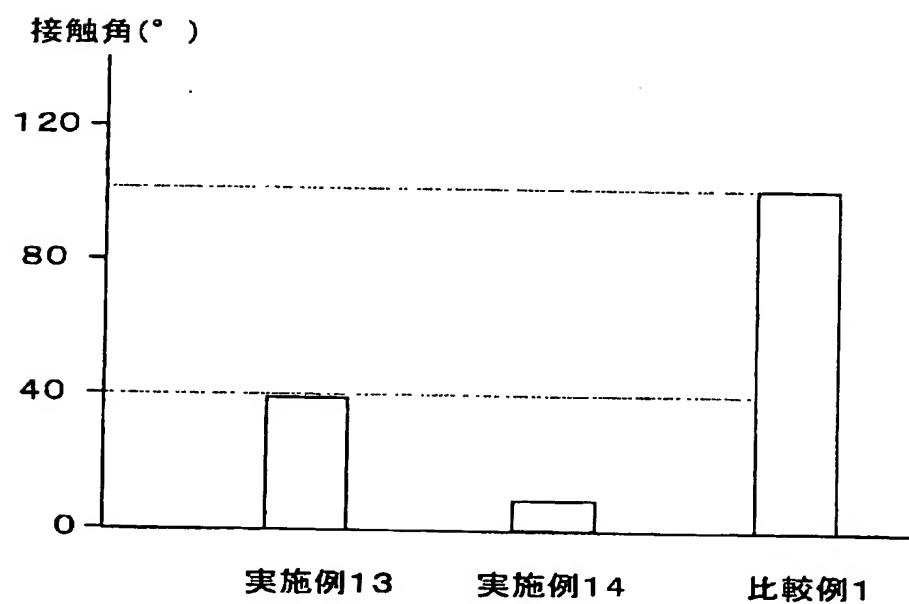


FIG. 7B

8/8

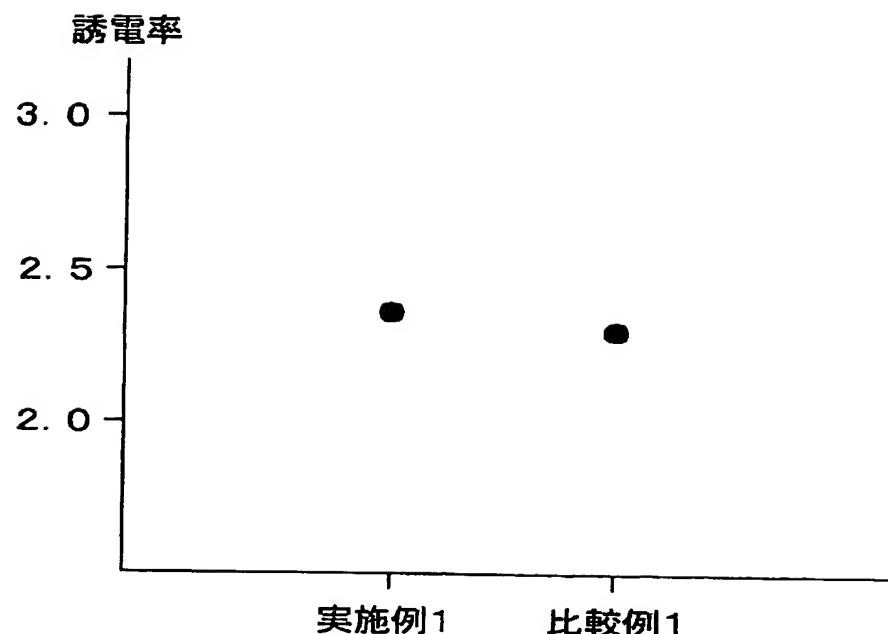


FIG. 8

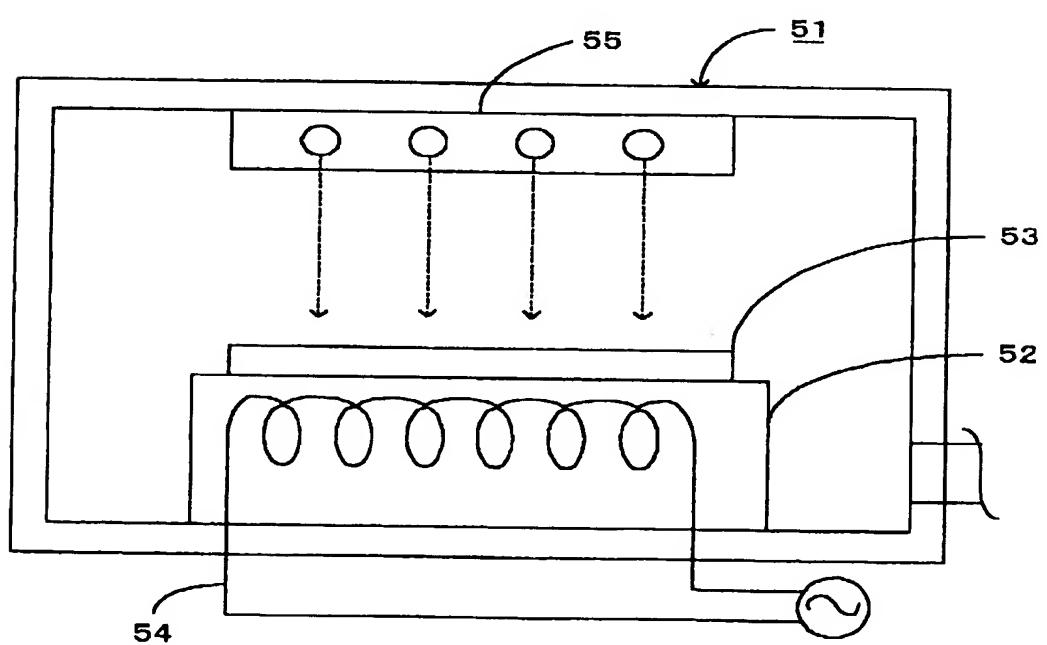


FIG. 9

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/005641

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
Int.Cl<sup>7</sup> H01L21/316

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H01L21/312, 21/316

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
 Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004  
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim
X	JP 7-201843 A (Tokyo Electron Ltd.), 04 August, 1995 (04.08.95), Par. Nos. [0013] to [0028]; Figs. 1 to 2	<u>1-3, 5-11</u>
A	Par. Nos. [0013] to [0028]; Figs. 1 to 2 & US 5518542 A column 23, line 42 to column 25, line 50; Figs. 26 to 27	<u>13-16</u> <u>4, 12</u>
X	JP 11-8233 A (LG Semicon Co., Ltd.), 12 January, 1999 (12.01.99), Par. Nos. [0006] to [0008], [0020] to [0021]; Figs. 1 to 2, 5	<u>1-3, 5-11</u>
A	Par. Nos. [0006] to [0008], [0020] to [0021]; Figs. 1 to 2, 5 (Family: none)	<u>13-16</u> <u>4, 12</u>

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or date and not in conflict with the application but cited to under the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
20 July, 2004 (20.07.04)

Date of mailing of the international search report  
03 August, 2004 (03.08.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/005641

**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim
A	JP 8-213383 A (NEC Corp.), 20 August, 1996 (20.08.96), Par. Nos. [0038] to [0043]; Fig. 1 (Family: none)	1-16

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' H01L 21/316

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' H01L 21/312, 21/316

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連 請求の範 囲
X	JP 7-201843 A (東京エレクトロン株式会社), 1995.08.04 【0013】-【0028】 , 図1-2	1-3, 5 13- 4, 1
A	【0013】-【0028】 , 図1-2 & US 5518542 A, 23欄42行-25欄50行, 図26-27	

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献、出願と矛盾するものではなく、発明の原理の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と上の文献との、当業者にとつて自明である、よって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

20. 07. 2004

国際調査報告の発送日

03. 8. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

和瀬田 芳正

4 R

電話番号 03-3581-1101 内線 3

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
<u>X</u>	JP 11-8233 A (エルジー セミコン カンパニー リミテッド) 1999.01.12 【0006】 - 【0008】 , 【0020】 - 【0021】 , 図1-2, 図5	<u>1-3, 5-1</u> <u>13-16</u>
A	【0006】 - 【0008】 , 【0020】 - 【0021】 , 図1-2, 図5 (ファミリーなし)	4, 12
A	JP 8-213383 A (日本電気株式会社) , 1996.08.20 【0038】 - 【0043】 , 図1 (ファミリーなし)	1-16